

# 钙钛矿氧化物异质结自旋极化输运机制研究\*

金奎娟<sup>†</sup> 韩鹏 陆珩 吕惠宾 杨国桢

(中国科学院物理研究所 北京凝聚态物理国家实验室 北京 100080)

**摘要** 文章介绍了一个基于弱 Hund 耦合规则以及载流子漂移扩散机制所提出的关于钙钛矿氧化物 p-n 异质结构的自旋极化输运机制的物理模型. 该理论不仅可以很好地解释由具有负磁阻效应的  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$  (LSMO) 与非磁性的  $\text{SrNb}_{0.01}\text{Ti}_{0.99}\text{O}_3$  (SNTO) 所组成的异质结中所存在的正磁电阻效应, 同时揭示了该体系中 LSMO 在界面区域的载流子与远离界面区域的载流子具有不同的自旋极化方向. 这一结果将为理解钙钛矿氧化物异质结及多层膜的自旋极化输运机制开辟了一条新的途径.

**关键词** 钙钛矿氧化物, 异质结, 自旋极化输运

## Mechanism of spin-polarized transport in perovskite oxide heterojunctions

JIN Kui-Juan<sup>†</sup> HAN Peng LU Heng LU Hui-Bin YANG Guo-Zhen

(Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

**Abstract** A model of spin-polarized transport in perovskite oxide p-n heterostructures is introduced based on the weak Hund coupling and semiconductor energy band theory. The positive colossal magnetoresistance (CMR) effect in the heterojunction of  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3/\text{SrNb}_{0.01}\text{Ti}_{0.99}\text{O}_3$  (LSMO/SNTO), which is composed of the negative CMR material LSMO and the nonmagnetic material SNTO, can be explained by using this model. Our theory paves a novel way for the understanding of the spin-polarized transport mechanism in these oxide heterostructures.

**Keywords** perovskite oxides, heterojunction, spin-polarized transport

## 1 引言

当今的微电子学利用荷电性由电场控制实现电子的输运过程, 半导体芯片造就了今日的信息时代. 而电子本身既是电荷的负载体, 同时又是自旋的负载体. 研究如何利用电子的自旋特性来操纵它的输运过程 (即自旋电子学) 就成为当代磁学研究的最新前沿. 通过研究这种介观尺度范围内自旋极化电子的输运特性 (包括自旋极化、自旋相关的散射与自旋弛豫) 以及基于这些独特性质而研制开发的在新的机理下工作的电子器件, 将成为 21 世纪电子设

备和计算机硬件技术的重要基础. 而具有铁磁性的钙钛矿氧化物中的电子自旋极化输运以及巨磁电阻、庞磁电阻 (CMR) 效应则是自旋电子学中重要的物理基础. 具有 CMR 效应的材料, 特别是类钙钛矿型氧化物是研究强关联作用的理想体系, 在这一体系中观察到的庞磁电阻、电荷有序、轨道有序、自旋玻璃态及相分离等许多有趣的物理现象, 已成为凝聚态物理学和材料学近年来的重要研究热点. 对钙

\* 国家自然科学基金 (批准号: 10674164) 和国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2007CB307005) 资助项目

2007-02-07 收到

<sup>†</sup> 通讯联系人. Email: kjjin@aphy.iphf.ac.cn

钛矿氧化物中自旋极化输运性质的研究不仅有利于加深人们对自旋电子学中基本物理概念的了解,而且对今后氧化物自旋电子器件的研制提供了物理理论基础。

为了揭示钙钛矿氧化物中自旋极化输运机制,物理学家们从实验和理论两个方面做了大量的研究工作<sup>[1-7]</sup>。在实验方面,随着激光分子束外延技术(laser-MBE)的发展和完善<sup>[2]</sup>以及实验测量设备的完善<sup>[3-7]</sup>,人们已经制备出多种钙钛矿氧化物异质结,并从中观测到许多与自旋极化输运相关的奇异物理现象<sup>[1-7]</sup>。在理论方面,近年来,我们应用团簇渗流模型,成功地解释了具有负磁阻效应的相分离锰氧化物  $\text{La}_{0.9}\text{Te}_{0.1}\text{MnO}_3$  及  $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$  薄膜在铁磁—顺磁相变点附近电阻率随温度变化的现象。理论结果表明,团簇渗流模型更能体现薄膜材料的物理机制——随温度升高,薄膜中的顺磁团簇尺寸增大,但团簇数目基本保持不变。这不同于块材中所呈现的随温度升高,顺磁团簇数目增大但团簇尺寸基本不变的现象<sup>[8]</sup>。最重要的是我们还发展了由具有负磁阻效应的  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$ (LSMO)与非磁性的  $\text{SrNb}_{0.01}\text{Ti}_{0.99}\text{O}_3$ (SNT0)所组成的异质结中出现正磁阻效应的物理机制的理论<sup>[9]</sup>。

截止到目前为止,对于复杂的带有界面的钙钛矿氧化物体系,精确的理论与计算几乎属于空白。在本文提出的模型中,将具有多关联性质的能态结构(来源于文献报道的对于氧化物材料光电子能谱和第一性原理计算的结果<sup>[4,10]</sup>)引入到远离界面的区域,而利用半导体中载流子的漂移—扩散模型自治计算了界面区域的能带结构。该理论很好地解释了由具有负磁阻效应的  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3$ (LSMO)与非磁性的  $\text{SrNb}_{0.01}\text{Ti}_{0.99}\text{O}_3$ (SNT0)所组成的异质结中的正磁阻效应的物理机制<sup>[9]</sup>。这一模型不仅很好地分析了这一奇特的物理现象的成因,而且证实了利用传统的半导体能带理论可以解释多关联氧化物异质结及多层膜体系中的自旋极化输运过程。

## 2 LSMO/SNT0 异质结中的自旋极化输运

磁致电阻(MR)是自旋极化输运过程中一个关键的物理量,它描述了电阻随外界磁场的变化程度。通常定义一个无量纲的比值来表征磁致电阻效应: $\frac{R_H - R_0}{R_0}$  或者  $\frac{R_H - R_0}{R_H}$ ,其中  $R_H$ 、 $R_0$  分别是有外加

磁场  $H$  和零磁场情形下的电阻,以下分析中按第一种形式定义磁电阻。根据磁场下电阻的增加或减少,磁阻效应可以分为正磁电阻效应( $\text{MR} > 0$ )和负磁电阻效应( $\text{MR} < 0$ ),根据此无量纲比值的大小,又可以定义不同程度的磁致电阻效应:当  $\frac{R_H - R_0}{R_0} < 0.1\%$  时,称为磁电阻效应(MR);当  $\frac{R_H - R_0}{R_0} > 20\%$  时,称为巨磁电阻效应(GMR);当  $\frac{R_H - R_0}{R_0}$  接近 100% 时,称为庞磁电阻效应(CMR)<sup>[1,11,12]</sup>。其中庞磁电阻效应于 1994 年首次在钙钛矿氧化物中被发现<sup>[11]</sup>,由于这类材料所具有的巨大的磁电阻特性,因而在磁记录、磁头以及自旋电子学等方面具有广泛的应用前景。

随着物理实验技术不断地发展,目前利用激光分子束外延(laser-MBE)技术,人们已经可以制备出性能优异的 LSMO/SNT0 氧化物异质结<sup>[2,5-7]</sup>。利用超导量子干涉仪(SQUID),我们可以得到在有外加磁场和不同温度(190K 到 290K)下 LSMO/SNT0 异质结的  $I-V$  曲线。在此实验过程中,磁场方向垂直于异质结的界面即平行于电流方向。图 1 给出了外磁场为零时测得的 LSMO/SNT0 异质结的整流特性曲线,图 1 中的插图给出了 p-n 结  $I-V$  曲线及电阻的测量的示意图,实验中加的外磁场是垂直于 p-n 结表面和界面的。外界磁场对于 p-n 结电压的影响在负偏压下更为明显,这是因为在负偏压下,p-n 结的电阻要大于其在正向偏压下的电阻的缘故。从图 2(a)~(c)中,我们可以明显地看出,LSMO/SNT0 异质结在不同磁场强度(5—1000Oe)、不同温度(190K,255K,290K)下正磁电阻效应(MR)对于异质结偏压的响应曲线:对于高温区的不同温度,随着磁场强度的增加,磁电阻效应愈加明显,这体现在对于某一特定的偏压,随着磁场强度地增加,磁电阻的数值增大,同时因为  $\frac{R_H - R_0}{R_0} > 0$ ,所以是正的庞磁电阻效应。经过观察可以发现,对于每条  $I-V$  曲线 CMR 的峰值区位于反向偏压为 -0.6 至 -0.8 的范围内。通过图 2 中不同温度下  $I-V$  曲线的比较,我们可以得到,对于特定的磁场和一定的偏压,当温度从 190K 变化到 255K 时,随着温度的上升,CMR 的数值增加;相反地,当温度从 255K 变化到 290K,随着温度的增加,磁电阻的数值反而下降。例如,对于磁场强度是 1000Oe、偏压为 -0.8V

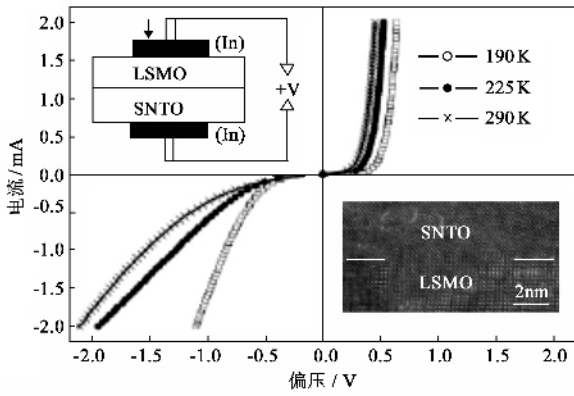


图1 在零磁场下 LSMO/SNTO 异质结的  $I-V$  曲线. 图中的插图给出了  $p-n$  结  $I-V$  曲线测量示意图, 箭头表示外加磁场方向

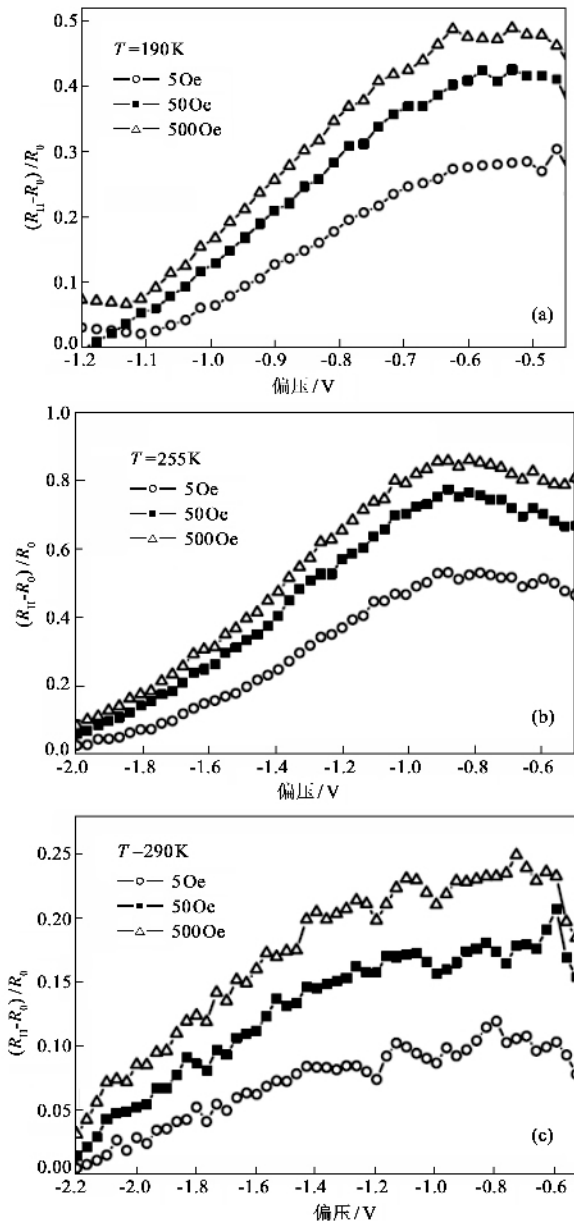


图2  $p-n$  结磁电阻随温度、磁场以及偏压的变化

的  $I-V$  曲线, 在 190K 时, 磁电阻的数值为 0.37, 低于 255K 时为 0.89, 而高于 290K 时为 0.26.

为了解释这一奇异的物理现象, 我们在远离 LSMO/SNTO 界面区引入具有多关联性质的能带结构, 并在界面区附近应用半导体中载流子的漂移-扩散模型来分析 LSMO/SNTO 异质结中的自旋极化输运过程. 我们知道, 在空穴掺杂的锰氧化物 LSMO 中, 由于立方晶体场的作用, 5 个  $3d$  轨道劈裂为三个  $t_{2g}$  能带和两个  $e_g$  能带. 同时, 由于 Jahn-Teller 畸变, 将会导致原先简并的  $e_g$  能带分裂为  $e_g^1$  带和  $e_g^2$  带. 更进一步地, 根据 Hund 耦合法则可使某一特定磁化态上的自旋退简并. 由文献 [4, 10] 所报道的  $La_{0.9}Sr_{0.1}MnO_3$  体材料的光电子能谱和基于第一性原理计算所得到的能带结构可知, 在这一体系中自旋向上  $t_{2g}^{\uparrow}$ 、自旋向下  $t_{2g}^{\downarrow}$  能带的劈裂小于由晶体场导致的  $e_g$ 、 $t_{2g}$  能带劈裂与由 Jahn-Teller 效应引起的两个  $e_g$  带之间的劈裂之和, 即所谓的弱 Hund 耦合<sup>[4]</sup>, 如图 3(a) 所示. 当  $p$ -LSMO 与  $n$ -SNTO 相接触时,  $p$  区 LSMO 中的空穴将会扩散至  $n$ -SNTO 中, 同时  $n$  区 SNTO 中的电子将会扩散到  $p$ -LSMO 中, 直到漂移和扩散作用达到动态平衡, 并在  $p-n$  结界面附近形成使能带弯曲的空间电荷区. 这时在界面附近, 电子不仅填满 LSMO 中  $e_g^{\uparrow}$  电子自旋向上的能带, 还会部分地填充  $t_{2g}$  电子自旋向下 ( $t_{2g}^{\downarrow}$ ) 的能带. LSMO/SNTO 异质结界面区域能带结构可以利用半导体漂移-扩散模型与 Poisson 方程联立的方式自洽求得, 如图 3(b) 所示. 在图 3(b) 中的区域 I 表示远离界面的 LSMO 的均匀体区; 区域 II 表示靠近界面的 LSMO 中的空间电荷区; 区域 III 表示靠近界面的 SNTO 中的空间电荷区; 区域 IV 表示远离界面的 SNTO 的均匀体区. 其中,  $E_F$  表示整个体系的费米能级,  $E_g$  表示  $t_{2g}^{\downarrow}$  与  $e_g^{\uparrow}$  能带的带隙,  $\Delta E$  表示在 LSMO 中  $e_g^{\uparrow}$  与  $t_{2g}^{\downarrow}$  带边的能量差.

现在我们来分析在外磁场作用下磁电阻随反向偏压的变化. 为了很好地分析 LSMO/SNTO 异质结中的正磁电阻效应, 我们分别定义在外加磁场条件下引起正磁电阻效应的电流  $\Delta I_+$  以及引起负磁电阻效应的电流  $\Delta I_-$ :

$$\Delta I_+ \propto \text{DOS}_I(E_{e_g^{\uparrow}}) \times \text{DOS}_{II}(E_{t_{2g}^{\downarrow}}), \quad (1)$$

$$\Delta I_- \propto \text{DOS}_I(E_{e_g^{\downarrow}}) \times \text{DOS}_{II}(E_{e_g^{\uparrow}}), \quad (2)$$

其中  $\text{DOS}_I(E_{e_g^{\uparrow}})$  表示在区域 I 中电子填充  $e_g^{\uparrow}$  能带的态密度,  $\text{DOS}_{II}(E_{e_g^{\uparrow}})$  表示区域 II 中参与导电的  $e_g^{\uparrow}$  能带中电子态密度,  $\text{DOS}_{II}(E_{t_{2g}^{\downarrow}})$  表示外加偏

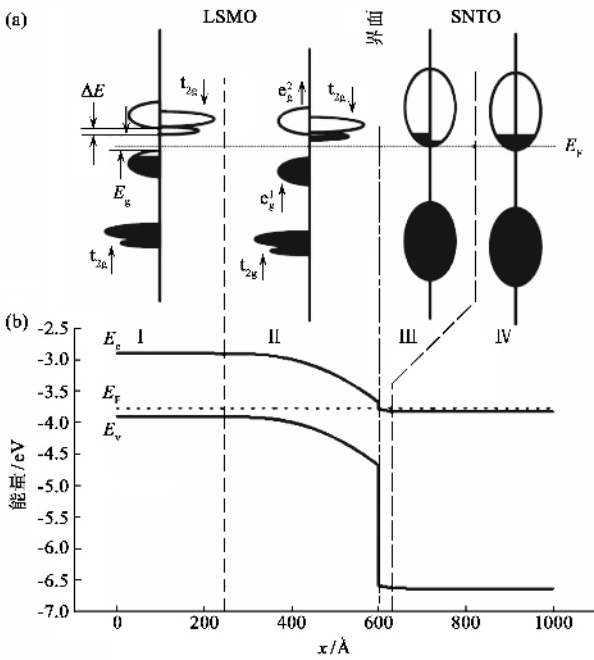


图3 LSMO/SNT0 态密度示意图 (a) 及自恰计算所得界面处能带结构图 (b)

压下区域 II 中参与导电的  $t_{2g}^{\downarrow}$  能带中电子态密度. 当  $\Delta I_+ > \Delta I_-$  时, 系统可以显示出正磁电阻效应. 从上述两个公式中, 我们发现区域 II 中  $t_{2g}^{\downarrow}$  能带是正磁电阻现象产生的根源, 并且在不同的外加偏压下, 两种电流之间的竞争关系将导致不同的磁阻现象的产生. 当对系统施加小的反向偏压, 区域 I 中的电子很难透过势垒  $E_g$  隧穿至区域 II, 此时在整个系统中几乎没有电流. 当外加反向偏压超过某个数值时, 区域 I 中价带上的电子可以隧穿到区域 II 中的导带, 此时开始有电流流过整个体系. 但是在这种情况下, 不同区域中电流的自旋态并不相同: 区域 I 中  $e_g^{1\uparrow}$  的多数 (majority) 自旋电子起主导作用, 区域 II 中  $t_{2g}^{\downarrow}$  的少数 (minority) 自旋电子和隧穿电流起主导作用. 随着外加磁场的增加, 区域 I 中多数自旋电子的极化度和区域 II 中的少数自旋电子的极化度同时增加, 所以具有不同自旋方向的载流子之间的散射作用将会导致由区域 I 流入区域 II 的电流越来越小, 从而观测到正磁电阻现象. 当外加反向偏压继续增加到某一特定值时, 区域 I 中的  $e_g^{1\uparrow}$  能带将与区域 II 中  $e_g^{2\uparrow}$  能带相交叠, 使得区域 II 中  $e_g^{2\uparrow}$  能带中的多数自旋电子参与电流输运, 即在更高的反向偏压下引起负磁电阻的电流将会参与到输运过程中, 因而导致体系总的正磁电阻下降. 通过以上的分析, 我们可以很好地解释图 2 所示的磁致电阻随着外加

偏压的变化. 类似地, 我们可以理解正磁电阻对于温度的依赖关系.

我们在实验中还发现, 不同掺杂的两种异质结—— $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{MnO}_3/\text{SrNb}_{0.01}\text{Ti}_{0.99}\text{O}_3$  和  $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3/\text{SrNb}_{0.01}\text{Ti}_{0.99}\text{O}_3$  中相异的磁电阻现象, 即较高的 Sr 掺杂浓度 (0.2) 所形成的异质结的正磁电阻效应较低. 由于较高的 Sr 掺杂浓度 (0.2) 将会导致费米能级的降低, 这将会导致区域 II 中的电子在  $t_{2g}^{\downarrow}$  中的少数载流子浓度降低, 因此导致 (1) 式中引起正磁电阻的电流下降, 这就解释了较高的 Sr 掺杂所导致的正磁电阻效应的下降.

尽管在实际的系统中, 区域 I、II、III、IV 的分界并不像图中所示的那样明显, 但是关于 LSMO/SNT0 异质结中正磁电阻效应的成因分析却是可以肯定的. 这一理论模型很好地揭示了具有负磁阻效应的 LSMO 与非磁性的 SNT0 所组成异质结中的正磁电阻效应的成因.

### 3 结束语

综上所述, 我们通过引入漂移-扩散机制处理氧化物 LSMO/SNT0 异质界面处的能带结构, 并将第一性原理计算获得的具有多关联性质的 LSMO 体材料的能带结构引入到远离界面的区域, 首次在理论上分析了在外加电场下 LSMO/SNT0 异质结中的自旋极化输运现象. 我们还提出了氧化物异质界面处自旋极化的不同乃是导致其正巨磁电阻的根源, 这不仅很好的解释了由具有负磁阻效应的 LSMO 与非磁性的 SNT0 所组成异质结中存在的正磁电阻效应, 而且为进一步分析具有多关联性质的钙钛矿氧化物异质结以及多层膜结构中奇异的物理现象提供了一种有效的方法.

### 参 考 文 献

- [ 1 ] Jin S, Tiefel T H, McCormack M *et al.* Science, 1994, 264 : 413
- [ 2 ] Yang G Z, Lu H B, Chen Z H *et al.* Sci. China, Ser. A : Math., Phys., Astron., 1998, 28 : 260
- [ 3 ] Sun J Z, Abraham D W, Poche K *et al.* Appl. Phys. Lett., 1998, 73 : 108
- [ 4 ] Mitra C, Raychaudhuri P, Dorr K *et al.* Phys. Rev. Lett., 2003, 90 : 017202
- [ 5 ] Lu H B, Yang G Z, Chen Z H *et al.* Appl. Phys. Lett., 2004, 84 : 5007; Lu H B, Dai S Y, Chen Z H *et al.* Chin. Phys. Lett., 2003, 20 : 137; Zhao K, Huang Y, Zhou Q *et al.* Appl. Phys. Lett., 2005, 86 : 221917

- [ 6 ] Tanaka H , Zhang J , Kawai T. Phys. Rev. Lett. , 2002 , 88 : 027204
- [ 7 ] Tiwari A , Jin C , Kumar D *et al.* Appl. Phys. Lett. , 2004 , 83 : 1773
- [ 8 ] Zhou Q l , Jin K J , Zhao K *et al.* Phys. Rev. B , 2005 , 72 : 224439  
Zhou Q l , Guan D Y , Jin K J *et al.* Chinese. Phys. Lett. , 2005 , 22 : 1749
- [ 9 ] Jin K J , Lu H B , Zhou Q I *et al.* Phys. Rev. B , 2005 , 71 : 184428
- [ 10 ] Nadgorny B , Mazin I I , Osofsky M *et al.* Phys. Rev. B , 2001 , 63 : 184433
- [ 11 ] Dagotto E , Hotta T , Moreo A. Phys. Rep. , 2001 , 344 : 1
- [ 12 ] 邢定钰. 物理 , 2005 , 34 : 348 [ Xing D Y. Wuli( Physics ) , 2005 , 34 : 348( in Chinese ) ]

## · 书评和书讯 ·

## 探索高等科教书店物理类书目推荐( I )

作者	书名	定价	作者	书名	定价
P. M. Chaikin	凝聚态物理学原理(影印)	115.0	费恩曼	费恩曼物理学讲义(1.2.3卷)·郑永令译	271.0
冯端	凝聚态物理学(上卷)	56.0	费恩曼	费恩曼物理学讲义(1.2.3卷)(影印)	230.0
姜寿亭	凝聚态磁性物理	48.0	S. 亚当斯	20世纪的物理学·周福新译	78.0
P. L. Taylor	凝聚态物理学的量子方法(影印)	69.0	H. Haken	原子和量子物理学·第6版(影印)	98.0
A. M. Tselik	凝聚态物理学中的量子场论(影印)	55.0	Serway&Jewett	物理学原理·第3版(上下册)(影印)	79.0
S. Doniach	固态物理学家用的格林函数(影印)	49.0	Hugh D. Young	西尔斯物理学(上下册)·第10版(影印)	80.0
田强	凝聚态物理学进展	45.0	保罗·齐策维茨	物理·原理与问题(1.2.3册)·仲新元译	82.0
O. Madelung	固态理论导论(影印)	69.0	阿特·霍布森	物理学·基本概念及其与方方面面的联系·秦克诚译	60.0
I. H. Shames	固体力学引论·第3版(影印)	64.0	HALLIDAY	物理学基础·第6版·张三慧译	160.0
C. 基泰尔	固体物理导论第8版·项金钟译	58.0	Eugene Hecht	物理·第2版(上下)(影印)	98.0
J. M. Ziman	固态理论原理·第2版(影印)	58.0	D. C. Giancoli	大学物理学·第3版(影印)	75.0
N. W. Ashcroft	固态物理学(影印)	98.0	S. P. 帕克	物理百科全书	220.0
蔭支唐	固态电子学基础·阮刚译	68.0	赵凯华	新概念物理教程·力学·第2版	32.7
李正中	固体理论(第2版)	51.0	赵凯华	新概念物理教程·光学	28.5
M. Dressel	固体中的概念(影印)	28.0	赵凯华	新概念物理教程·电磁学	34.2
M. Dressel	固体电动力学(影印)	78.0	张永德	物理学大题典(1-7)(美国物理试题与解答的再版)	395.0
黄昆	固体物理学	23.9	阮图南	大学物理解题法诠释	25.0
陆栋、蒋平	固体物理学	58.0	舒幼生	物理学难题集萃·增订本	67.9
斯特里特曼	固体电子器件·杨建红译	40.5	H. 斯托克	物理手册·吴锡真译	68.0
沈以赴	固体物理学基础教程	52.0	薛凤家	诺贝尔物理学奖百年回顾	26.0

欢迎全国读者邮购我店专业书籍,请按以下方式和我们联系:

电话 D10-82872662、62556876、89162848 电子邮箱 explorerbook@vip.163.com

通讯地址 北京市海淀区海淀大街31号313北京探索高等科教书店 邮政编码 100080 联系人 徐亮、秦运良

欢迎访问探索高等科教书店网址 <http://www.explorerbook.com>